

20

## TENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Translation

Applicant's or agent's file reference FP-DS-0027	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP97/02500	International filing date (day/month/year) 18 July 1997 (18.07.1997)	Priority date (day/month/year) 23 July 1996 (23.07.1996)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC A61K 47/30		
Applicant DAIICHI PHARMACEUTICAL CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

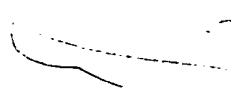
2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 27 January 1998 (27.01.1998)	Date of completion of this report 12 October 1998 (12.10.1998)
Name and mailing address of the IPEA/JP 	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

Form PCT/IPEA/409 (cover sheet) (January 1994)

Best Available Copy

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP97/02500

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☒ the international application as originally filed.
- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP97/02500

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;  
citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-16	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-16	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-16	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

The inventions of claims 1-16 are neither disclosed in any of the documents cited in the ISR nor obvious to a person skilled in the art.

no  
IT

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference HP97-74N5092	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP98/02500	International filing date (day/month/year) 05 June 1998 (05.06.1998)	Priority date (day/month/year) 11 July 1997 (11.07.1997)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC A01N 43/60, 25/04, 25/30		
Applicant NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 18 January 1999 (18.01.1999)	Date of completion of this report 01 March 1999 (01.03.1999)
Name and mailing address of the IPEA/JP Japanese Patent Office, 4-3 Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan Facsimile No.	Authorized officer  Telephone No. (81-3) 3581 1101

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/02500

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

☒ the international application as originally filed

☐ the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the claims:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the drawings:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the sequence listing part of the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).

☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).

☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

☐ contained in the international application in written form.

☐ filed together with the international application in computer readable form.

☐ furnished subsequently to this Authority in written form.

☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.

☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.

☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages \_\_\_\_\_

☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_

☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP98/02500

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-4	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-4	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-4	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

P C T

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 12 MAR 1999

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 HP97-74N5092	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 98/02500	国際出願日 (日.月.年) 05.06.98	優先日 (日.月.年) 11.07.97
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>8</sup> A01N43/60, A01N25/04, A01N25/30		
出願人 (氏名又は名称) 日産化学工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で            ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 18.01.99	国際予備審査報告を作成した日 01.03.99	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 大久保元浩 電話番号 03-3581-1101 内線 3445	4H 8828

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)

請求の範囲  
請求の範囲

1 - 4

有  
無

進歩性 (I S)

請求の範囲  
請求の範囲

1 - 4

有  
無

産業上の利用可能性 (I A)

請求の範囲  
請求の範囲

1 - 4

有  
無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

# PCT

## REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No. PCT/JP98/02500

International Filing Date June 5, 1998

Japanese Patent Office

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference  
(if desired) (12 characters maximum) HP97-74N5092

**Box No. I TITLE OF INVENTION**  
AQUEOUS SUSPENDED AGRICULTURAL CHEMICAL COMPOSITION

**Box No. II APPLICANT**

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

Nissan Chemical Industries, Ltd.

7-1, Kandanishiki-cho 3-Chome, Chiyoda-ku,  
Tokyo 101-0054, Japan

☐ This person is also inventor.

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

State (that is, country) of nationality:  
Japan

State (that is, country) of residence:  
Japan

This person is applicant for the purposes of: ☐ all designated States ☒ all designated States except the United States of America ☐ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

**Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)**

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

SHIO Katsushi

c/o Nissan Chemical Industries, Ltd. Central Research  
Institute, 722-1, Tsuboi-cho, Funabashi-shi,  
Chiba-ken 274-8507, Japan

This person is:

☐ applicant only

☒ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:  
Japan

State (that is, country) of residence:  
Japan

This person is applicant for the purposes of: ☐ all designated States ☐ all designated States except the United States of America ☒ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

☒ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

**Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE**

The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as:

☒ agent ☐ common representative

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.)

6831 HANABUSA Tsuneo  
9319 NAKAMURA Toshio

Telephone No.

03-3291-9721

Facsimile No.

03-3291-1628  
03-3295-6749

Teleprinter No.

c/o Hanabusa Patent Office, Ochanomizu Square B, 6,  
Kandasurugadai 1-Chome, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0062,  
Japan

☐ Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.

## Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

*If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request.*

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

SUZUKI Shoji

c/o Nissan Chemical Industries, Ltd. Central Research  
Institute, 722-1, Tsuboi-cho, Funabashi-shi,  
Chiba-ken 274-8507, Japan

This person is:

☐ applicant only

☒ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

Japan

State (that is, country) of residence:

Japan

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States

☐ all designated States except the United States of America

☒ the United States of America only

☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

MATSUMOTO Naoki

c/o Nissan Chemical Industries, Ltd. Central Research  
Institute, 722-1, Tsuboi-cho, Funabashi-shi,  
Chiba-ken 274-8507, Japan

This person is:

☐ applicant only

☒ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

Japan

State (that is, country) of residence:

Japan

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States

☐ all designated States except the United States of America

☒ the United States of America only

☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

This person is:

☐ applicant only

☐ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

State (that is, country) of residence:

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States

☐ all designated States except the United States of America

☐ the United States of America only

☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

This person is:

☐ applicant only

☐ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

State (that is, country) of residence:

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States

☐ all designated States except the United States of America

☐ the United States of America only

☐ the States indicated in the Supplemental Box

☐ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.

## Box No.V DESIGNATION OF STATES

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):

## Regional Patent

- ☒ AP ARIPO Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swaziland, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- ☒ EA Eurasian Patent: AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakhstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- ☒ EP European Patent: AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, CY Cyprus, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- ☒ OA OAPI Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

## National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):

- |   |  |
|---|--|
| <input checked="" type="checkbox"/> AL Albania                              | <input checked="" type="checkbox"/> LS Lesotho                                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> AM Armenia                              | <input checked="" type="checkbox"/> LT Lithuania                                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> AT Austria                              | <input checked="" type="checkbox"/> LU Luxembourg                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU Australia                            | <input checked="" type="checkbox"/> LV Latvia                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> AZ Azerbaijan                           | <input checked="" type="checkbox"/> MD Republic of Moldova                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina               | <input checked="" type="checkbox"/> MG Madagascar                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> BB Barbados                             | <input checked="" type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia |
| <input checked="" type="checkbox"/> BG Bulgaria                             |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> BR Brazil                               | <input checked="" type="checkbox"/> MN Mongolia                                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> BY Belarus                              | <input checked="" type="checkbox"/> MW Malawi                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Canada                               | <input checked="" type="checkbox"/> MX Mexico                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> CH and LI Switzerland and Liechtenstein | <input checked="" type="checkbox"/> NO Norway                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China                                | <input checked="" type="checkbox"/> NZ New Zealand                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> CU Cuba                                 | <input checked="" type="checkbox"/> PL Poland                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> CZ Czech Republic                       | <input checked="" type="checkbox"/> PT Portugal                                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> DE Germany                              | <input checked="" type="checkbox"/> RO Romania                                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> DK Denmark                              | <input checked="" type="checkbox"/> RU Russian Federation                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> EE Estonia                              | <input checked="" type="checkbox"/> SD Sudan                                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> ES Spain                                | <input checked="" type="checkbox"/> SE Sweden                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> FI Finland                              | <input checked="" type="checkbox"/> SG Singapore                                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> GB United Kingdom                       | <input checked="" type="checkbox"/> SI Slovenia                                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> GE Georgia                              | <input checked="" type="checkbox"/> SK Slovakia                                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> GH Ghana                                | <input checked="" type="checkbox"/> SL Sierra Leone                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> GM Gambia                               | <input checked="" type="checkbox"/> TJ Tajikistan                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> GW Guinea-Bissau                        | <input checked="" type="checkbox"/> TM Turkmenistan                              |
| <input type="checkbox"/> HR Croatia   | <input checked="" type="checkbox"/> TR Turkey                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> HU Hungary                              | <input checked="" type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> ID Indonesia                            | <input checked="" type="checkbox"/> UA Ukraine                                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> IL Israel                               | <input checked="" type="checkbox"/> UG Uganda                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> IS Iceland                              | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan                                |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> KE Kenya                                | <input checked="" type="checkbox"/> UZ Uzbekistan                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan                           | <input checked="" type="checkbox"/> VN Viet Nam                                  |
| <input type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea           | <input checked="" type="checkbox"/> YU Yugoslavia                                |
|   | <input checked="" type="checkbox"/> ZW Zimbabwe                                  |
| <input type="checkbox"/> KR Republic of Korea                               |  |
| <input type="checkbox"/> KZ Kazakhstan                                      |  |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia                                     |  |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka                                       |  |
| <input type="checkbox"/> LR Liberia   |  |

Check-boxes reserved for designating States (for the purposes of a national patent) which have become party to the PCT after issuance of this sheet:

**Precautionary Designation Statement:** In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all other designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) indicated in the Supplemental Box as being excluded from the scope of this statement. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying that designation and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.)

Box No. VI PRIORITY CLAIM			<input type="checkbox"/> Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.		
Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:			
		national application: country	regional application: regional Office	international application: receiving Office	
item (1) 11/07/1997	Japanese Patent Application No. 9-186553	Japan		Japanese Patent Office	
item (2) 28/04/1998	Japanese Patent Application No. 10-118457	Japan		Japanese Patent Office	
item (3)					

☒ The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office) identified above as item(s): (1), (2)

\* Where the earlier application is an ARIPO application, it is mandatory to indicate in the Supplemental Box at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)). See Supplemental Box.

## Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

Choice of International Searching Authority (ISA) (if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used): ISA / JP	Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority): Date (day/month/year)      Number      Country (or regional Office)
---	---

## Box No. VIII CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING

This international application contains the following number of sheets: request : 4 description (excluding sequence listing part) : 12 claims : 1 abstract : 1 drawings : 0 sequence listing part of description : Total number of sheets : 18	This international application is accompanied by the item(s) marked below: 1. <input checked="" type="checkbox"/> fee calculation sheet 2. <input checked="" type="checkbox"/> separate signed power of attorney 3. <input type="checkbox"/> copy of general power of attorney; reference number, if any: 4. <input type="checkbox"/> statement explaining lack of signature 5. <input type="checkbox"/> priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): 6. <input type="checkbox"/> translation of international application into (language): 7. <input type="checkbox"/> separate indications concerning deposited microorganism or other biological material 8. <input type="checkbox"/> nucleotide and/or amino acid sequence listing in computer readable form 9. <input checked="" type="checkbox"/> other (specify): Request for sending priority document
---	--

Figure of the drawings which should accompany the abstract:

Language of filing of the international application: Japanese

## Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT OR AGENT

Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).

HANABUSA Tsuneo  
NAKAMURA Toshio

For receiving Office use only		2. Drawings:  <input type="checkbox"/> received:  <input type="checkbox"/> not received:
1. Date of actual receipt of the purported international application:		
3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application:		
4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2):		
5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA / JP	6. <input type="checkbox"/> Transmittal of search copy delayed until search fee is paid.	

Date of receipt of the record copy by the International Bureau:

For International Bureau use only

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

United States Patent and Trademark  
Office  
(Box PCT)  
Crystal Plaza 2  
Washington, DC 20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)

11 February 1999 (11.02.99)

International application No.

PCT/JP98/02500

Applicant's or agent's file reference

HP97-74N5092

International filing date (day/month/year)

05 June 1998 (05.06.98)

Priority date (day/month/year)

11 July 1997 (11.07.97)

Applicant

SHIO, Katsushi et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

18 January 1999 (18.01.99)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

K. Takeda

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
DOCUMENT TRANSMITTED

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

United States Patent and Trademark  
Office  
(Box PCT)  
Crystal Plaza 2  
Washington, DC 20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)

18 February 1999 (18.02.99)

International application No.

PCT/JP97/02500

International filing date (day/month/year)

18 July 1997 (18.07.97)

Applicant

DAIICHI PHARMACEUTICAL CO., LTD. et al

The International Bureau transmits herewith the following documents and number thereof:

           copy of the English translation of the international preliminary examination report (Article 36(3)(a))The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Sean Taylor

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



<b>(51) 国際特許分類6</b> <b>A01N 43/60, 25/04, 25/30</b>	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO99/02036</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 1999年1月21日(21.01.99)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP98/02500 <b>(22) 国際出願日</b> 1998年6月5日(05.06.98) <b>(30) 優先権データ</b> 特願平9/186553 1997年7月11日(11.07.97) JP 特願平10/118457 1998年4月28日(28.04.98) JP <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 日産化学工業株式会社 (NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.)(JP/JP) 〒101-0054 東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1 Tokyo, (JP) <b>(72) 発明者 ; および</b> <b>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ)</b> 塩 勝至(SHIO, Katsushi)(JP/JP) 鈴木昭司(SUZUKI, Shoji)(JP/JP) 松本直樹(MATSUMOTO, Naoki)(JP/JP) 〒274-8507 千葉県船橋市坪井町722番地1 日産化学工業株式会社 中央研究所内 Chiba, (JP)		<b>(74) 代理人</b> 弁理士 蓼 経夫, 外(HANABUSA, Tsuneo et al.) 〒101-0062 東京都千代田区神田駿河台1丁目6番地 お茶の水スクエアB館, 蓼特許事務所 Tokyo, (JP)  <b>(81) 指定国</b> AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  添付公開書類 国際調査報告書
<b>(54) Title: AQUEOUS SUSPENSION-TYPE PESTICIDE COMPOSITION</b>  <b>(54) 発明の名称</b> 水性懸濁農薬組成物  <b>(57) Abstract</b> An aqueous suspension-type pesticide composition which contains (a) ethyl (R)-2-[4-(6-chloroquinoxalin-2-yloxy)phenoxy]propionate containing $\beta$ -crystals at a proportion of more than 80 % by weight; (b) surfactants; and (c) water. The composition sustains a high fluidity even under severe storage conditions, is reduced in the growth of the contained quizalofop-ethyl grains, and has an excellent storage stability.		



本発明は、成分（a）β型結晶の比率が80重量%以上であるエチル＝（R）  
 -2-[4-(6-クロロキノキサリン-2-イルオキシ)フェノキシ]プロピ  
 オナート、成分（b）界面活性剤および成分（c）水を含有する水性懸濁農薬組  
 成物に関する。本発明の水性懸濁農薬組成物は、過酷な保存条件下でも水性懸濁  
 組成物の流動性が良好であり、またキザロホップ-p-エチルの粒子成長も小さ  
 く、保存安定性が良好である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア 共和国	TR	トルコ
BJ	ベナン	GR	ギリシャ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CA	カナダ	ID	インドネシア	MW	マラウイ	US	米国
CF	中央アフリカ	IE	アイルランド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IL	イスラエル	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IN	インド	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボアール	IS	アイスランド	NO	ノールウェー	ZW	ジンバブエ
CM	カメルーン	IT	イタリア	NZ	ニュージーランド		
CN	中国	JP	日本	PL	ポーランド		
CU	キューバ	KE	ケニア	PT	ポルトガル		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	RO	ルーマニア		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	RU	ロシア		
DE	ドイツ	KR	韓国	SD	スーダン		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	SE	スウェーデン		
EE	エストニア	LC	セントルシア	SG	シンガポール		
ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン				

## 明細書

## 水性懸濁農薬組成物

技術分野

本発明は、エチル＝(R)－2－〔4－(6－クロロキノキサリン－2－イルオキシ)フェノキシ〕プロピオナートを含有する保存安定性が良好な水性懸濁農薬組成物に関する。

背景技術

エチル＝(R)－2－〔4－(6－クロロキノキサリン－2－イルオキシ)フェノキシ〕プロピオナート（以下、キザロホップ－p－エチルという）は、低融点型結晶（以下 $\alpha$ 型結晶という）と高融点型結晶（以下 $\beta$ 型結晶という）との2種類の結晶形の存在が知られている（特公平4－76721号公報）。

キザロホップ－p－エチルは従来乳剤として取り扱われてきたが、有機溶剤を含有せずより安全性が高い水性懸濁組成物（フロアブル剤）が望まれている。しかしながら工業的に生産される $\alpha$ 型結晶のキザロホップ－p－エチルの微粉末を用いて水性懸濁組成物を製造した場合、製造後に50℃で30日間の過酷な条件下で保存すると保存中にこの水性懸濁組成物の流動性が悪化する現象が認められることがあり、保存安定性の更なる向上が求められていた。

発明の開示

本発明者らは前記課題を解決すべく鋭意研究した結果、 $\beta$ 型結晶の比率が少なくとも80重量%以上であるキザロホップ－p－エチル、界面活性剤および水を含有する水性懸濁農薬組成物は、保存安定性が非常に良好であることを発見し本発明を完成させた。すなわち、本発明は、下記〔1〕～〔4〕に関するものである。

〔1〕下記の成分（a）、成分（b）および成分（c）を含有する水性懸濁農薬組成物。

（a） $\beta$ 型結晶の比率が80重量%以上であるエチル＝(R)－2－〔4－(6－クロロキノキサリン－2－イルオキシ)フェノキシ〕プロピオナート

(b) 界面活性剤

(c) 水

〔2〕成分(a)は、 $\beta$ 型結晶の比率が85重量%以上であるエチル＝(R)－2－〔4－(6－クロロキノキサリン－2－イルオキシ)フェノキシ〕プロピオナートである上記〔1〕記載の水性懸濁農薬組成物。

〔3〕成分(a)は、 $\beta$ 型結晶の比率が90重量%以上であるエチル＝(R)－2－〔4－(6－クロロキノキサリン－2－イルオキシ)フェノキシ〕プロピオナートである上記〔1〕記載の水性懸濁農薬組成物。

〔4〕水性懸濁組成物100重量部に対して、成分(a)が1～60重量部、成分(b)が0.1～60重量部および成分(c)が20～95重量部である上記〔1〕ないし〔3〕記載の水性懸濁農薬組成物。

本発明の水性懸濁農薬組成物で用いるキザロホップ－p－エチルは、該農薬組成物の保存安定性の面から $\beta$ 型結晶の比率が少なくとも80重量%以上であるが、より好ましくは85重量%以上、更に好ましくは90重量%以上である。 $\beta$ 型結晶の比率が80重量%未満であると、水性懸濁農薬組成物を50℃で30日間等の過酷な条件下で保存したときに、該組成物中でキザロホップ－p－エチルの粒子径が大きくなったり（以下粒子成長という）、該組成物の流動性が悪化することがある。粒子成長は除草効果上好ましくなく、流動性の悪化は使用上好ましくない。

キザロホップ－p－エチルには、示差走査熱量測定において、74℃付近に吸熱ピークをもつ板状結晶である $\alpha$ 型結晶（低融点型結晶）と80℃付近に吸熱ピークをもつ針状結晶である $\beta$ 型結晶（高融点型結晶）が知られている。

キザロホップ－p－エチルの2つの結晶形は、粉末X線回折、示差走査熱量測定および顕微鏡観察により容易に判別できる。

2つの結晶形の特徴を以下に示す。

	融点	結晶形状	特徴的な X 線回折ピーク
$\alpha$ 型結晶	74 ~ 76 °C	板状	$2\theta = 4.36, 8.68$
$\beta$ 型結晶	80 ~ 82 °C	微細針状	$2\theta = 5.32, 6.38$

$\alpha$  型結晶と  $\beta$  型結晶の重量比率は、示差走査熱量測定におけるそれぞれの吸熱ピークの面積比と近似するため、 $\alpha$  型結晶と  $\beta$  型結晶の重量比率はそれぞれの吸熱ピークの面積比から求めることができる。

$\beta$  型結晶の比率が 80 重量% 以上であるキザロホップ-*p*-エチルを得る方法としては、特に限定されるものではないが、例えば特公平 4-76721 号公報に記載されている方法が挙げられる。また、当該方法により、 $\beta$  型結晶を任意の比率で含有するキザロホップ-*p*-エチルを得ることができる。

また、本発明では、キザロホップ-*p*-エチルに代えてプロバキザホップ (propaquizafof / 一般名)、キザロホップ-*p*-テフリル (quizalofop-*p*-tefuryl / 一般名) およびフェノキサプロップ-エチル (fenoxaprop-ethyl / 一般名) 等のジフェニルエーテル系除草剤を用いてもよい。この場合、 $\beta$  型結晶は高融点型結晶を意味し、 $\alpha$  型結晶は低融点型結晶を意味する。

本発明に使用できる界面活性剤としては、特に制限はなく従来より農薬製剤分野において使用される種々のアニオン性界面活性剤、非イオン性界面活性剤等が用いられる。以下にその例を挙げるが、本発明ではここに例示のものに限らない。

アニオン性界面活性剤としては、アルキルスルホン酸、アルキルオレフィンスルホン酸、リグニンスルホン酸、アルキルベンゼンスルホン酸、アルキルナフタレンスルホン酸、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物およびジアルキルスルホサクシネート等のスルホン酸系界面活性剤ならびにそれらの塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェート、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテルサルフェート、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルサルフェート、ポリオキシエチレンフェニルアルキルアリルエーテルサルフェート、ポリオキシアルキレングリコールサルフェート、高級アルコールサルフェートおよび脂

脂肪酸エステルサルフェート等のサルフェート系界面活性剤ならびにそれらの塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルホスフェート、ポリオキシエチレンアルキルアリルホスフェート、ポリオキシエチレンフェニルアルキルアリルエーテルホスフェート、高級アルコールホスフェートおよびポリオキシエチレントリベンジルフエノールホスフェート等のホスフェート系界面活性剤ならびにそれらの塩等を挙げることができる。上記の塩としては、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム、アンモニウム、エタノールアミン、ジエタノールアミンおよびトリエタノールアミン等の塩が挙げられる。

非イオン性界面活性剤としては、例えばポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンフェニルアルキルアリルエーテル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックコポリマー、ポリオキシアルキレングリコール、アルキンジオール（アセチレングリコール）、アルキニレンポリオキシエチレンジオール、ソルビタン脂肪酸エステルおよびアルキルアリルエーテルホルマリン縮合物等を挙げることができる。

これら界面活性剤は一種または二種以上混合してもよく、混合する場合の比も自由に選択できる。

本発明の水懸濁農薬組成物中において、 $\beta$ 型結晶の比率が80重量%以上であるキザロホップーエチルの含有量は、特に限定されるものではないが、該組成物100重量部に対し、通常1～60重量部、好ましくは3～50重量部である。界面活性剤の含有量は、通常0.1～60重量部であり、好ましくは0.3～50重量部である。水の含有量は、通常20～95重量部である。

本発明の組成物には更に以下の農薬活性成分を含有することができる。

例えば、ジフルフェニカン（Diflufenican／一般名）、プロパニル（Propanil／一般名）、ジカンバ（Dicamba／一般名）、ピクロラム（Picloram／一般名）、2,4-D（一般名）、2,4-DB（一般名）、2,4-DP（一般名）、フルロキシビル（Fluroxypyr／一般名）、MCPA（一般名）、MCPP（一般名）、トリクロピル（Triclopyr／一般名）、ジクロホップーメチル（

Diclofop-methyl /一般名)、フェノキサプロップーエチル (Fenoxaprop-ethyl /一般名)、フルアジホップーブチル (Fluazifop-buthyl /一般名)、ハロキシホップーメチル (Haloxypop-methyl /一般名)、クロリダゾン (Chloridazon /一般名)、ノルフルラゾン (Norflurazon /一般名)、クロルプロバム (Chlorpropham /一般名)、デスメジバム (Desmedipham /一般名)、フェンメジバム (Phenmedipham /一般名)、プロバム (Propham /一般名)、アラクロル (Alachlor /一般名)、アセトクロル (Acetochlor /一般名)、ブタクロル (Butachlor /一般名)、メタザクロル (Metazachlor /一般名)、メトラクロル (Metolachlor /一般名)、プレチラクロル (Pretilachlor /一般名)、プロバクロル (Propachlor /一般名)、オリザリン (Oryzalin /一般名)、ペンジメタリン (Pendimethalin /一般名)、トリフルラリン (Trifluralin /一般名)、アシフルオルフェン (Acifluorfen /一般名)、ビフェノックス (Bifenox /一般名)、フルオログリコフェン (Fluoroglycofen /一般名)、フォメサフェン (Fomesafen /一般名)、ハロサフェン (Halosafen /一般名)、ラクトフェン (Lactofen /一般名)、オキシフルオルフェン (Oxyfluorfen /一般名)、クロルトロン (Chlortoluron /一般名)、ジウロン (Diuron /一般名)、フルオメトロン (Fluometuron /一般名)、イソプロトロン (Isoproturon /一般名)、リニュロン (Linuron /一般名)、メタベンズチアズロン (Metabenzthiazuron /一般名)、レナシル (Lenacil /一般名)、プロマシル (Bromacil /一般名)、イマザビル (Imazapyr /一般名)、イマザキン (Imazaquin /一般名)、イマゼタビル (Imazethapyr /一般名)、イマザメタベンズ (Imazamathabanz /一般名)、イマザモックス (Imazamox /一般名)、アロキシジム (Alloxydim /一般名)、クレトジム (Clethodim /一般名)、シクロキシジム (Cycloxydim /一般名)、セトックスジム (Sethoxdim /一般名)、タルコキシジム (Talkoxydim /一般名)、プロモキシニル (Bromoxynil /一般名)、ジクロベニル (Dichlobenil /一般名)、イオックスニル (Ioxnil /一般名)、メフェナセット (Mefenacet /一般名)、アミドスルフロン (Amidosulfuron /一般名)、ベンスルフロンーメチル (Bensulfuron-methyl /一般名)、クロリムロンーエチル (Chlorimuron-ethyl /一般名)、クロルスルフロン (Chlorsulfuron /一般名)

名)、シノスルフロン (Cinosulfuron/一般名)、メトスルフロン-メチル (Metsulfuron-methyl/一般名)、ニコスルフロン (Nicosulfuron/一般名)、プリミスルフロン (Primisulfuron /一般名)、プロスルフロン (Prosulfuron /一般名)、ハロスルフロン-メチル (Halosulfuron-methyl /一般名)、チフェンスルフロン-メチル (Thifensulfuron-methyl /一般名)、トリアスルフロン (Triasulfuron/一般名)、トリベニューロン-メチル (Tribenuron-methyl /一般名)、ブチレート (Butylate/一般名)、シクロエート (Cycloate/一般名)、ジアレート (Diallate/一般名)、E P T C (一般名)、エスプロカルブ (Esprocarb /一般名)、モリネート (Molinate/一般名)、プロスルホカルブ (Prosulfocarb/一般名)、チオベンカルブ (Thiobencarb /一般名)、トリアレート (Triallate /一般名)、アトラジン (Atrazine/一般名)、シアナジン (Cyanazine /一般名)、シマジン (Simazine/一般名)、シメトリン (Simetryne /一般名)、テルブトリン (Terbutryn /一般名)、テルブチラジン (Terbutylazin/一般名)、ヘキサジノン (Hexazinon /一般名)、メタミトロ (Metamitron/一般名)、メトリブジン (Metribuzin/一般名)、アミノトリアゾール (Aminotriazole /一般名)、ベンフレセート (Benfuresate /一般名)、ベントゾン (Bentazon/一般名)、シンメチリン (Cinmethylin /一般名)、クロマゾン (Clomazone /一般名)、クロピラリド (Clopyralid/一般名)、ジフェンゾコート (Difenzoquat /一般名)、ジチオピル (Dithiopyl /一般名)、エトフマセート (Ethofumasate/一般名)、フルオロクロリドン (Fluorochloridone/一般名)、グルホシネート (Glufosinate /一般名)、グリホサート (Glyphosate/一般名)、イソキサベン (Isoxaben/一般名)、パラコート (Paraquat/一般名)、ピリデート (Pyridate/一般名)、キンクロラック (Quinclorac/一般名)、キンメラック (Quinmerac /一般名)、スルホセート (Sulphosate/一般名)、トリジファン (Tridiphane/一般名)、フルメトスラム (Flumetsulam /一般名)、フルチアセト-メチル (Fluthiacet-methyl /一般名)、スルフエントラゾン (Sulfentrazone /一般名)、カルフェントラゾン (Carfentrazone /一般名)、ジメテナミド (Dimethenamid/一般名)、イソキサフルトール (Isoxaflutole/一般名)、オキサスルフロン (Oxasulfuron /

一般名)、クロランスラムーメチル (Cloransulam-methyl / 一般名)、フルミクロラックーペンチル (Flumiclorac-penthy / 一般名)、フルチアミド (Fluthiamide / 一般名)、アクロニフェン (Aclonifen / 一般名) およびベナゾリン (Benazolin / 一般名) 等が挙げられる。

これらの農薬活性成分は1種または2種以上混合してもよく、混合する場合の比も自由に選択できる。本発明の組成物中への添加量は適宜選択できるが、好ましくは0.1～50重量部の範囲で選択することができる。

本発明の組成物において含有できる各種補助剤としては、増粘剤、凍結防止剤、消泡剤、防菌防黴剤および着色剤等があり、下記のものが挙げられる。

本発明の組成物で用いられる増粘剤は、特に制限はなく、有機、無機の天然物、合成品および半合成品を用いることができ、例えば、ザンサンガム (キサンタンガム)、ウェランガムおよびラムザンガム等のヘテロ多糖類、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸、ポリアクリル酸ナトリウムおよびポリアクリルアミド等の水溶性高分子化合物、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カルボキシエチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロースおよびヒドロキシプロピルセルロース等のセルロース誘導体、モンモリロナイト、サボナイト、ヘクトライト、ベントナイト、ラボナイトおよび合成スメクタイト等のスメクタイト系粘土鉱物等を例示することができる。これらの増粘剤は一種または二種以上混合してもよく、混合する場合の比も自由に選択できる。これらの増粘剤はそのまま添加してもよく、またあらかじめ水に分散させたものを添加しても良い。また、本発明の組成物に添加する際の添加量も自由に選択することができる。

本発明の組成物は、必要に応じて凍結防止剤を用いることができる。用いることができる凍結防止剤としては、例えばエチレングリコール、ジエチレングリコールおよびプロピレングリコール等を加えることができる。また、本発明の組成物に添加する際の添加量も自由に選択することができる。

更にシリコーン系エマルジョン等の消泡剤、防菌防黴剤および着色剤等を配合してもよい。防菌防黴剤としては、種々の物を用いることができるが、例えば安息香酸およびその塩、プロクセル G X L (アイ・シー・アイ社製) ならびにプロ



クセルXL-2（アイ・シー・アイ社製）等のものを用いることができる。この他にも種々の防菌防黴剤から適宜選択できる。また、本発明の組成物に添加する際の添加量も自由に選択することができる。

本発明の組成物の製法としては、例えば界面活性剤を添加混合した水中に本発明の組成物に含まれる固体成分を混合し、サンドグラインダー等の湿式粉碎機で微粒化処理したものに増粘剤等の他の補助剤を添加混合する方法が挙げられる。

#### 発明を実施するための最良の形態

次に、本発明の組成物の製剤の実施例および比較に用いた水性懸濁農薬組成物の製剤の比較例を説明する。実施例および比較例中で「部」は重量部を示す。なお本発明がこれら実施例に限定されるものでない。

#### 実施例 1

##### 1. 粉碎スラリーの調製

水59.35部にソルポール3353（ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルとポリオキシエチレン-ポリオキシプロピレンブロックポリマーとの混合物／東邦化学工業㈱、商品名）4.5部、アンチホームE-20（シリコーン系消泡剤／花王㈱、商品名）0.15部を溶解させ、これにキザロホップ-p-エチル（ $\beta$ 型結晶の比率：100重量%）36部を分散させ、1.0～1.5mm $\phi$ ガラスビーズ300gを用いてサンドグラインダー（アイメックス㈱製）で2000rpm、冷却水温度＝10～15℃、品温＝10～20℃に保ち、120分湿式粉碎し、粉碎スラリーを得た。

##### 2. 分散媒の調製

水67.48部にバンゲル（スメクタイト系粘土鉱物質／増粘剤／R.T.VANDERBILT社製、商品名）2.25部、キサントガム0.14部、プロキセルGXL（アイ・シー・アイ社製、商品名）0.14部の順に分散させ、さらにプロピレングリコール30部を添加して分散媒を得た。

##### 3. 水性懸濁農薬組成物の調製

上記粉碎スラリーと分散媒を2：1の割合で混合して均一な水性懸濁農薬組成物を得た。

##### 4. 水性懸濁組成物中におけるキザロホップ-p-エチルの結晶形の確認

得られた水性懸濁農薬組成物から約 3 g を取り、約 60 ml の水に懸濁させた後、遠心分離器（国産遠心機製 H-300 型、3000 rpm × 15 分）にかけ上澄みを除去する。得られた沈降物を約 60 ml の水に懸濁させ再び遠心分離器にかける。この水洗操作を 6 回繰り返す。得られた沈降物を濾紙上に広げ、これをデシケータ内で約 20 時間乾燥したものを 3～5 mg 秤取り示差走査熱量測定（マックサイエンス社製示差走査熱量計 3100、昇温速度 = 1℃/分、サンプリング / 0.3 秒）を行った。示差走査熱量測定における  $\alpha$  型結晶と  $\beta$  型結晶の吸熱ピークの面積比から、キザロホップ-*p*-エチル中の  $\beta$  型結晶の比率を求めたところ 100 重量%であった。

#### 実施例 2～5

実施例 1 の方法に従い、キザロホップ-*p*-エチル中の  $\beta$  型結晶の比率が 80 重量%以上である水性懸濁農薬組成物を得た（実施例 2：96%、実施例 3：90%、実施例 4：85%、実施例 5：80%）。

#### 実施例 6

キザロホップ-*p*-エチル（ $\beta$  型結晶の比率：100 重量%）を用い、ソルボール 3353 4.5 部をソフロフォル FL（ポリオキシエチレントリスチリルフェニルエーテルリン酸塩 / ローヌ・ブーラン社、商品名）4.5 部に変えた以外は実施例 1 と同一の方法により、水性懸濁農薬組成物を調製した。得られた水性懸濁農薬組成物中のキザロホップ-*p*-エチルは、 $\beta$  型結晶の比率が 100 重量%であった。

#### 実施例 7

##### 1. 粉碎スラリーの調製

水 43.62 部にプロピレングリコール 6.25 部、ソルボール 3353 3.75 部、ノブコ 8034 L（シリコン系消泡剤 / サンノブコ社、商品名）0.13 部を溶解させ、これにキザロホップ-*p*-エチル（ $\beta$  型結晶の比率：100 重量%）46.25 部を分散させ、1.0～1.5 mm  $\phi$  ガラスビーズ 300 g を用いてサンドグラインダーで 2000 rpm、冷却水温度 = 5～10℃、品温 = 10～20℃に保ち、120 分湿式粉碎し、粉碎スラリーを得た。

##### 2. 分散媒の調製

水 99.5 部にラムザンガム 0.25 部、プロキセル X L - 2 (アイ・シー・アイ社製、商品名) 0.25 部の順に分散させ、分散媒を得た。

### 3. 水性懸濁農薬組成物の調製

上記粉砕スラリーと分散媒を 4 : 1 の割合で混合して均一な水性懸濁農薬組成物を得た。得られた水性懸濁農薬組成物中のキザロホップー p - エチルは、 $\beta$  型結晶の比率が 100 重量%であった。

#### 実施例 8

実施例 7 の方法に従い、キザロホップー p - エチル中の  $\beta$  型結晶の比率が 96 重量%である水性懸濁農薬組成物を得た。

#### 実施例 9

##### 1. 粉砕スラリーの調製

水 35.44 部にプロピレングリコール 5.56 部、ソルポール 3353 3.33 部、ノブコ 8034 L 0.11 部を溶解させ、これにキザロホップー p - エチル ( $\beta$  型結晶の比率: 100 重量%) 55.56 部を分散させ、1.0 ~ 1.5 mm  $\phi$  ガラスビーズ 300 g を用いてサンドグラインダーで 2000 rpm、冷却水温度 = 5 ~ 10  $^{\circ}\text{C}$ 、品温 = 10 ~ 20  $^{\circ}\text{C}$  に保ち、120 分湿式粉砕し、粉砕スラリーを得た。

##### 2. 分散媒の調製

水 99.5 部にウエランガム 0.25 部、プロキセル G X L 0.25 部の順に分散させ、分散媒を得た。

##### 3. 水性懸濁農薬組成物の調製

上記粉砕スラリーと分散媒を 9 : 1 の割合で混合して均一な水性懸濁農薬組成物を得た。得られた水性懸濁農薬組成物中のキザロホップー p - エチルは、 $\beta$  型結晶の比率が 100 重量%であった。

#### 比較例 1 ~ 4

実施例 1 の方法に従い、キザロホップー p - エチル中の  $\beta$  型結晶の比率が 80 重量%未満である水性懸濁農薬組成物を得た (比較例 1 : 78%、比較例 2 : 38%、比較例 3 : 10%、比較例 4 : 0%)。

#### 試験例

実施例 1 ～ 9 および比較例 1 ～ 4 で得られた水性懸濁農薬組成物の粒子径と粘度を測定し、更にこれらを 50 ml 容のバイアル瓶に入れ、50℃の恒温槽で 30 日間保存した後の粒子径と粘度を測定した。

#### 1. 粒子径の測定方法

レーザー回折方式粒子サイズアナライザー LS-130 (株コールター社製) を用い、光学モデルとして garnet. omd を用いたときの体積中位径 ( $d_{50}$ ) の値 ( $\mu\text{m}$ ) を測定した。

#### 2. 粘度の測定方法

粘度計 DV-III (株ブルックフィールド社製) を用い、No. 2 ローター、30 rpm、25℃での粘度を測定した。

結果を第 1 表に示す。但し、表中の記号は以下の意味を表す。

A : 水性懸濁組成物中におけるキザロホップ-*p*-エチル中の  $\beta$  型結晶の比率 (重量%)

B : 製造直後の水性懸濁組成物中のキザロホップ-*p*-エチル粒子の体積中位径 ( $\mu\text{m}$ )

C : 製造直後の水性懸濁組成物の粘度 (cps)

D : 50℃×30日後の水性懸濁組成物中の粒子の体積中位径 ( $\mu\text{m}$ )

E : 50℃×30日後の水性懸濁組成物の粘度 (cps)

第 1 表

	製造直後の物理性			50℃×30日後の物理性	
	A	B	C	D	E
実施例 1	100	1.3	180	1.9	248
実施例 2	96	1.4	213	1.8	321
実施例 3	90	1.2	167	2.0	252
実施例 4	85	1.3	216	2.2	279
実施例 5	80	1.3	193	2.4	332
実施例 6	100	1.1	178	1.6	232
実施例 7	100	1.0	202	1.7	185
実施例 8	96	1.2	227	1.6	178
実施例 9	100	1.3	451	2.1	337
比較例 1	78	1.2	178	4.3	>1000
比較例 2	38	1.4	201	5.8	>1000
比較例 3	10	1.1	194	4.9	>1000
比較例 4	0	1.2	225	5.2	>1000

上表から、キザロホップー p - エチルの  $\beta$  型結晶の比率が 80 重量%以上であれば、50℃で30日間の苛酷な保存条件下でも、水性懸濁組成物の流動性が良好なため取り扱いが容易であり、またキザロホップー p - エチルの粒子成長が小さいので除草活性も良好であり、保存安定性が優れていることが分かる。

#### 発明の効果

本発明の水性懸濁農薬組成物は、苛酷な保存条件下でも水性懸濁組成物の流動性が良好であり、またキザロホップー p - エチルの粒子成長も小さく、保存安定性が良好である。

## 請求の範囲

1. 下記の成分 (a)、成分 (b) および成分 (c) を含有する水性懸濁農薬組成物。

(a)  $\beta$  型結晶の比率が 80 重量%以上であるエチル = (R) - 2 - [4 - (6 - クロロキノキサリン - 2 - イルオキシ) フェノキシ] プロピオナート

(b) 界面活性剤

(c) 水

2. 成分 (a) は、 $\beta$  型結晶の比率が 85 重量%以上であるエチル = (R) - 2 - [4 - (6 - クロロキノキサリン - 2 - イルオキシ) フェノキシ] プロピオナートである請求項 1 記載の水性懸濁農薬組成物。

3. 成分 (a) は、 $\beta$  型結晶の比率が 90 重量%以上であるエチル = (R) - 2 - [4 - (6 - クロロキノキサリン - 2 - イルオキシ) フェノキシ] プロピオナートである請求項 1 記載の水性懸濁農薬組成物。

4. 水性懸濁組成物 100 重量部に対して、成分 (a) が 1 ~ 60 重量部、成分 (b) が 0.1 ~ 60 重量部および成分 (c) が 20 ~ 95 重量部である請求項 1 ないし 3 記載の水性懸濁農薬組成物。

**This Page Blank (uspto)**

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 56-39077, A (アイ・アイ・オーストラリア・リミテッド) 14. 4月. 1981 (14. 04. 81) & EP, 23785, A1 & DE, 3070413, C1 & CA, 1314549, C & AU, 8432647, B	1 - 4
A	JP, 57-203066, A (日産化学工業株式会社) 13. 12月. 1982 (13. 12. 82) (ファミリーなし)	1 - 4
A	MIYAKE, K. et al. 'Crystallization behaviors of $\alpha$ - and $\beta$ -Quizalofop-ethyl polymorphs in homogeneous nucleation', ACS Symp. Ser., (1997) 667 (Separation and purification by crystallization) p. 101-110	1 - 4
A	SHIROISHI, A. et al. 'Semi-batch cooling crystallization of quizalofop-ethyl with polymorphism', ACS Symp. Ser., (1990) 438 (Cryst. sep. process) p. 261-270	1 - 4
A	SAKATA, G. et al. 'Preparation of optically pure ethyl (R)-(+)- and (S)-(-)-2-[4-(6-Chloro-2-quinoxalinyloxy)phenoxy]propanoate by resolution method and their herbicidal activities', J. Pesticide Sci., (1985) 10(1) p. 75-79	1 - 4
A	MAKINO, K. et al. 'Crystal structure of a new herbicide, ethyl 2-[4-(6-chloro-2-quinoxalinyloxy)phenoxy]propanoate', J. Pesticide Sci., (1986) 11(2) p. 237-243	1 - 4
A	SAKATA, G. et al. 'Synthesis and herbicidal activity of optically active ethyl 2-[4-(6-chloro-2-quinoxalinyloxy)phenoxy]propanoate', J. Pesticide Sci., (1985) 10(1) p. 69-73	1 - 4
A	JP, 7-53526, A (日本バイエルアグリケム株式会社) 28. 2月. 1995 (28. 02. 95) & EP, 593998, A1	1 - 4



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>6</sup> A01N43/60, A01N25/04, A01N25/30

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>6</sup> A01N1/00-65/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 2-214504, A (日産化学工業株式会社) 27.8月.1990 (27.08.90) & JP, 4-76721, B2	1-4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26.08.98

国際調査報告の発送日

08.09.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大久保 元 浩 印

4H

8828

電話番号 03-3581-1101 内線 3445

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/02500

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	SHIROISHI, A. et al., "Semi-batch cooling crystallization of quizalofop-ethyl with polymorphism", ACS Symp. Ser., (1990) 438 (Cryst. sep. process) p.261-270	1-4
A	SAKATA, G. et al., "Preparation of optically pure ethyl (R)-(+ and (S)-(-)-2-[4-(6-Chloro-2-quinoxalinyloxy) phenoxy]propanoate by resolution method and their herbicidal activities", J. Pesticide Sci., (1985) 10(1) p.75-79	1-4
A	MAKINO, K. et al., "Crystal structure of a new herbicide, ethyl 2-[4-(6-chloro-2-quinoxalinyloxy)phenoxy]propanoate", J. Pesticide Sci., (1986) 11(2) p.237-243	1-4
A	SAKATA, G. et al., "Synthesis and herbicidal activity of optically active ethyl 2-[4-(6-chloro-2-quinoxalinyloxy)phenoxy]propanoate", J. Pesticide Sci., (1985) 10(1) p.69-73	1-4
A	JP, 7-53526, A (Nihon Bayer Agrochem K.K.), 28 February, 1995 (28. 02. 95) & EP, 593998, A1	1-4

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/02500

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>6</sup> A01N43/60, A01N25/04, A01N25/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>6</sup> A01N1/00-65/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 2-214504, A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 27 August, 1990 (27. 08. 90) & JP, 4-76721, B2	1-4
A	JP, 56-39077, A (ICI Australia Ltd.), 14 April, 1981 (14. 04. 81) & EP, 23785, A1 & DE, 3070413, C1 & CA, 1314549, C & AU, 8432647, B	1-4
A	JP, 57-203066, A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 13 December, 1982 (13. 12. 82) (Family: none)	1-4
A	MIYAKE, K. et al., "Crystallization behaviors of $\alpha$ - and $\beta$ - Quizalofop-ethyl polymorphs in homogeneous nucleation", ACS Symp. Ser., (1997) 667 (Separation and purification by crystallization) p.101-110	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
26 August, 1998 (26. 08. 98)Date of mailing of the international search report  
8 September, 1998 (08. 09. 98)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: \_\_\_\_\_**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**